

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-268959

(43)Date of publication of application : 05.10.1999

(51)Int.Cl.

C04B 35/622  
C04B 35/632  
C08K 3/18  
C08L 33/04  
C08L101/08

(21)Application number : 10-070028

(71)Applicant : MURATA MFG CO LTD

(22)Date of filing : 19.03.1998

(72)Inventor : MIYAZAKI MAKOTO

KIMURA KOJI

OGURA TAKETSUGU

### (54) CERAMIC SLURRY COMPOSITION

#### (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain an aqueous ceramic slurry composition having good dispersibility and fluidity, exhibiting excellent formability of the ceramic and capable of giving a green sheet having a high density.

SOLUTION: This ceramic slurry composition contains ceramic raw material powder, a water-soluble binder and a dispersing agent. The water-soluble binder is a copolymer having a number-average molecular weight of 5,000-300,000, produced by the copolymerization of an unsaturated monomer containing carboxyl group and a reactive monomer copolymerizable with the carboxyl-containing unsaturated monomer and containing 0.5-30 wt.% of the carboxyl-containing unsaturated monomer in the copolymer composition. The dispersing agent is a copolymer having a number-average molecular weight of 500-50,000, produced by copolymerizing a carboxyl-containing unsaturated monomer and a reactive monomer copolymerizable with the carboxyl-containing unsaturated monomer and containing 60-99.9 wt.% of the carboxyl-containing unsaturated monomer in the copolymer composition.

### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平 1 1 - 2 6 8 9 5 9

(43) 公開日 平成 11 年 (1999) 10 月 5 日

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>	識別記号			F I		
C 0 4 B	35/622			C 0 4 B	35/00	G
	35/632			C 0 8 K	3/18	
C 0 8 K	3/18			C 0 8 L	33/04	
C 0 8 L	33/04				101/08	
	101/08			C 0 4 B	35/00	1 0 8
	審査請求	未請求	請求項の数 6	O L		(全 7 頁)
(21) 出願番号	特願平10-70028					
(22) 出願日	平成10年(1998)3月19日					
(71) 出願人	000006231 株式会社村田製作所 京都府長岡京市天神二丁目26番10号					
(72) 発明者	宮崎 信 京都府長岡京市天神二丁目26番10号 株式 会社村田製作所内					
(72) 発明者	木村 幸司 京都府長岡京市天神二丁目26番10号 株式 会社村田製作所内					
(72) 発明者	小倉 丈承 京都府長岡京市天神二丁目26番10号 株式 会社村田製作所内					
(74) 代理人	弁理士 小柴 雅昭 (外1名)					

(54) 【発明の名称】 セラミックスラリー組成物

(57) 【要約】

【課題】 分散性、流動性が良好で、かつセラミックの成形性に優れ、高密度なグリーンシートを得ることができる水系のセラミックスラリー組成物を提供すること。

【解決手段】 セラミック原料粉末と、水溶性バインダーと、分散剤とを含み、水溶性バインダーを、カルボキシル基含有不飽和モノマーと、このカルボキシル基含有不飽和モノマーと共重合可能な反応性モノマーとが共重合した、共重合体組成中にカルボキシル基含有不飽和モノマーを 0.5 ～ 30 重量% の割合で含む、数平均分子量が 5000 ～ 30 万の共重合体とし、分散剤を、カルボキシル基含有不飽和モノマーと、このカルボキシル基含有不飽和モノマーと共重合可能な反応性モノマーとが共重合した、共重合体組成中にカルボキシル基含有不飽和モノマーを 60 ～ 99.9 重量% の割合で含む、数平均分子量が 500 ～ 5 万の共重合体とする。

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 セラミック原料粉末と、水溶性バインダーと、分散剤とを含むセラミックスラリー組成物であって、

前記水溶性バインダーは、カルボキシル基含有不飽和モノマーと、このカルボキシル基含有不飽和モノマーと共重合可能な反応性モノマーとが共重合した、共重合体組成中にカルボキシル基含有不飽和モノマーを 0. 5 ～ 3 0 重量%の割合で含む、数平均分子量が 5 0 0 0 ～ 3 0 万の共重合体であり、

前記分散剤は、カルボキシル基含有不飽和モノマーと、このカルボキシル基含有不飽和モノマーと共重合可能な反応性モノマーとが共重合した、共重合体組成中にカルボキシル基含有不飽和モノマーを 6 0 ～ 9 9. 9 重量%の割合で含む、数平均分子量が 5 0 0 ～ 5 万の共重合体であることを特徴とする、セラミックスラリー組成物。

【請求項 2】 前記水溶性バインダーおよび前記分散剤のカルボキシル基の少なくとも一部が、アンモニアおよび／またはアミンと塩を形成している、請求項 1 に記載のセラミックスラリー組成物。

【請求項 3】 前記水溶性バインダーおよび前記分散剤の前記反応性モノマーが、炭素数 1 ～ 8 のアルキル基を有する（メタ）アクリレートを含んでいる、請求項 1 または 2 に記載のセラミックスラリー組成物。

【請求項 4】 前記水溶性バインダーの数平均分子量が、前記分散剤の数平均分子量より大きい、請求項 1 ないし 3 のいずれかに記載のセラミックスラリー組成物。

【請求項 5】 前記水溶性バインダーは、前記セラミック原料粉末 1 0 0 重量部に対して、固形分として 1 ～ 2 5 重量部の割合で含まれている、請求項 1 ないし 4 のいずれかに記載のセラミックスラリー組成物。

【請求項 6】 前記分散剤は、前記セラミック原料粉末 1 0 0 重量部に対して、固形分として 0. 1 ～ 5 重量部の割合で含まれている、請求項 1 ないし 5 のいずれかに記載のセラミックスラリー組成物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】本発明は、セラミックスラリー組成物、詳しくは、セラミックグリーンシートを作製する際に用いられるセラミックスラリー組成物に関する。

## 【0 0 0 2】

【従来の技術】セラミックグリーンシート（以下、グリーンシートという）を作製するには、セラミック原料粉末にバインダーおよび溶剤などを混合してスラリーを調製し、これをシート状に成形していた。この種のバインダーは、従来より、ポリビニルブチラルなどを使用され、アルコール系溶媒または芳香族系溶媒等の各種の有機溶媒を用いてスラリーを調製していた。しかし、有機溶媒を用いるために、爆発や火災を防ぐための防爆設備

が必要であり、また、臭気の発生や毒性等の観点より人体に対する安全衛生対策を講ずる必要があった。そのため、グリーンシートの製造コストが高くなるという不具合を招いていた。

【0 0 0 3】そこで、ポリビニルアルコールなどの水溶性バインダーを使用して、水系のスラリーを調製することが種々提案されている。

## 【0 0 0 4】

【発明が解決しようとする課題】しかし、水系スラリーは、有機溶媒系スラリーに比べて分散性が悪く、そのため、水溶性バインダーよりも低分子量の分散剤を配合することが提案されている（特開昭 5 9 - 1 2 1 1 5 2 号公報、特開昭 6 1 - 4 6 0 9 6 号公報）。しかし、依然として有機溶媒系スラリーに比べて分散性が悪く、分散性の良好な水系スラリーの開発が望まれている。

【0 0 0 5】本発明の目的は、分散性、流動性が良好で、かつセラミックの成形性に優れ、高密度なグリーンシートを得ることができる水系のセラミックスラリー組成物を提供することにある。

## 【0 0 0 6】

【課題を解決するための手段】上記の目的を達成するため、本発明のセラミックスラリー組成物は、セラミック原料粉末と、水溶性バインダーと、分散剤とを含むセラミックスラリー組成物であって、前記水溶性バインダーが、カルボキシル基含有不飽和モノマーと、このカルボキシル基含有不飽和モノマーと共重合可能な反応性モノマーとが共重合した、共重合体組成中にカルボキシル基含有不飽和モノマーを 0. 5 ～ 3 0 重量%の割合で含む、数平均分子量が 5 0 0 0 ～ 3 0 万の共重合体であり、前記分散剤が、カルボキシル基含有不飽和モノマーと、このカルボキシル基含有不飽和モノマーと共重合可能な反応性モノマーとが共重合した、共重合体組成中にカルボキシル基含有不飽和モノマーを 6 0 ～ 9 9. 9 重量%の割合で含む、数平均分子量が 5 0 0 ～ 5 万の共重合体であることを特徴としている。

【0 0 0 7】また、前記水溶性バインダーおよび前記分散剤のカルボキシル基は、アンモニアおよび／またはアミンと塩を形成していることが好ましい。また、前記水溶性バインダーおよび前記分散剤の前記反応性モノマーが、炭素数 1 ～ 8 のアルキル基を有する（メタ）アクリレートを含んでいることが好ましい。

【0 0 0 8】また、前記水溶性バインダーの数平均分子量が、前記分散剤の数平均分子量より大きいことが好ましい。また、前記セラミック原料粉末 1 0 0 重量部に対して、前記水溶性バインダーが、固形分として 1 ～ 2 5 重量部、前記分散剤が、固形分として 0. 1 ～ 5 重量部の割合でそれぞれ含まれていることが好ましい。

## 【0 0 0 9】

【発明の実施の形態】本発明のセラミックスラリー組成物は、セラミック原料粉末と、水溶性バインダーと、分

散剤とを含んでいる。本発明で用いられるセラミック原料粉末としては、セラミックの原料として用いられる公知のものであれば特に限定されないが、たとえば、アルミナ、ジルコニア、酸化チタン、炭酸バリウム、チタン酸バリウム、チタン酸ジルコン酸鉛、フェライトーマンガン等の酸化物系のセラミック原料粉末が挙げられる。これらは、単独または2種以上併用してもよい。また、これらのセラミック原料粉末は、その平均粒径が0.1～1.0 $\mu$ mであることが好ましい。

【0010】本発明で用いられる水溶性バインダーは、カルボキシル基含有不飽和モノマーと、このカルボキシル基含有不飽和モノマーと共重合可能な反応性モノマーとを共重合させたものである。カルボキシル基含有不飽和モノマーとしては、カルボキシル基と重合性不飽和結合とを有する化合物であれば特に限定されないが、たとえば、(メタ)アクリル酸(本明細書においては、アクリル酸およびメタクリル酸の両者を含めて、(メタ)アクリル酸と言う。)などの不飽和1価カルボン酸、たとえば、マレイン酸、イタコン酸、フマル酸などの不飽和2価カルボン酸およびそのハーフエステル等が挙げられる。これらは、単独または2種以上併用してもよく、好ましくは、(メタ)アクリル酸である。

【0011】また、このカルボキシル基含有不飽和モノマーと共重合可能な反応性モノマーとしては、たとえば、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、イソプロピル(メタ)アクリレート、n-ブチル(メタ)アクリレート、イソブチル(メタ)アクリレート、シクロヘキシル(メタ)アクリレート、2-エチルヘキシル(メタ)アクリレートなどの炭素数1～8のアルキル基を有する(メタ)アクリレート、たとえば、メトキシメチル(メタ)アクリレート、メトキシポリエチレングリコール(メタ)アクリレート(n=2, 3, 4, 8, 24)などのオキシアルキレン基を有する(メタ)アクリレート、たとえば、2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシブチル(メタ)アクリレートなどの水酸基を有する(メタ)アクリレート、たとえば、グリシジルメタクリレートなどのエポキシ基を有する(メタ)アクリレートなどのアクリレート類、その他、たとえば、(メタ)アクリロニトリル、アクリルアミド、N-メチロールアクリルアミド、スチレン、エチレン、酢酸ビニル、N-ビニルピロリドンなどが挙げられる。これらは、単独または2種以上併用してもよい。好ましくは、アクリレート類、さらに好ましくは、炭素数1～8のアルキル基を有する(メタ)アクリレート、とりわけ、炭素数1～4のアルキル基を有する(メタ)アクリレートが共重合されていることが好ましい。(メタ)アクリレート類は、疎水性があるため、形成されたグリーンシートは吸湿しにくく、雰囲気湿度の影響を受けにくくなる。

【0012】カルボキシル基含有不飽和モノマーと反応

性モノマーとの共重合は、何ら制限なく公知の重合方法により行なうことができ、たとえば、溶液重合により行なうことが好ましく、常法に従い、70～99.9%、好ましくは、90～95%共重合させる。このようにして得られた水溶性バインダーは、その共重合体組成中に、上記カルボキシル基含有不飽和モノマーが、0.5～30重量%、好ましくは、5～10重量%の割合で含有されている。カルボキシル基含有不飽和モノマーが、0.5重量%よりも少ないと、バインダーの極性が小さく分散性が非常に悪い。一方、カルボキシル基含有不飽和モノマーが、30重量%を超えると、水溶性バインダーは自己凝集力が強くなりすぎて逆に分散性が低下する。また、カルボキシル基含有不飽和モノマーが少ない方が吸湿しにくく、雰囲気湿度による影響を受けにくい。

【0013】また、得られた共重合体の数平均分子量(Mn)は、5000～30万、好ましくは、3万～10万である。分子量が5000より少ないと、水溶性バインダーの凝集力が弱く、グリーンシートのシート強度が小さくなってしまふ。一方、分子量が30万を超えると、スラリーの粘度が高くなりすぎて分散不良を起こす。この数平均分子量は、標準物質としてポリスチレンを用いて、GPC(ゲルパーミエーションクロマトグラフィー)測定によって求められるポリスチレン換算の数平均分子量である(なお、以下に述べる数平均分子量についても同様である)。

【0014】また、得られた水溶性バインダーの共重合体には、アンモニアおよび/またはアミンを加えて、共重合体中のカルボキシル基の一部または全部を、アンモニアおよび/またはアミンの塩とすることが好ましい。アンモニアおよび/またはアミンの塩とすることで、水溶性が付与される。添加されるアミンは、1級、2級、3級または4級のいずれのアミンをも使用でき、たとえば、モノエタノールアミン(1級)、ジエタノールアミン(2級)、トリエタノールアミン(3級)などが挙げられ、使用の便宜性を考慮するとアンモニア水が好ましい。この場合、アンモニアおよび/またはアミンを加えた後のpHを、6～9に調整することが好ましい。水溶性バインダーの水溶液をほぼ中性に保つと、セラミック原料粉末から水溶液中に溶出しやすいイオン性物質の溶解を防ぐことができる。

【0015】また、上記水溶性バインダーと併用する本発明の分散剤は、カルボキシル基含有不飽和モノマーと、このカルボキシル基含有不飽和モノマーと共重合可能な反応性モノマーとを共重合させたものである。カルボキシル基含有不飽和モノマーおよび反応性モノマー、およびその好ましいもの、または、好ましい重合方法については、上記で例示したものと同様であり、この点、水溶性バインダーと同様の組成を有する共重合体得られるが、共重合体組成中のカルボキシル基含有不飽和モノ

10

20

30

40

50

ノマーの割合が、60～99.9重量%、好ましくは60～80重量%であり、かつ、共重合体の数平均分子量が、500～5万である点で水溶性バインダーと相違する。

【0016】水溶性バインダーがカルボキシル基含有不飽和モノマーを0.1～30重量%含んでいるのに対し、分散剤にカルボキシル基含有不飽和モノマーを、それよりも多い60～99.9重量%含ませることにより、分散剤をセラミック原料粉末に強く吸着させて、水溶性バインダーがセラミック原料粉末に吸着することを少なくすることができる。この場合、カルボキシル基含有不飽和モノマーが60重量%より少ないと、分散剤の親水性が低下し、セラミック原料粉末に吸着しにくくなる。一方、カルボキシル基含有不飽和モノマーが99.9重量%を超えると、疎水性がなくなり、分散剤としての凝集力が強くなりすぎてセラミック原料粉末の種類によっては分散不良を引き起こす。また、分散剤に少なくとも疎水性を持たせておくことで、水溶性バインダーとある程度の親和力でもって結合でき、良好な分散性を得ることができる。さらに、分散剤は、後述するようにセラミックスラリー組成物の中でも添加量が少ないため、水溶性バインダーのように雰囲気湿度の影響を受けにくく、耐湿性の観点からカルボキシル基含有不飽和モノマーを減少させる必要はない。

【0017】また、分散剤の共重合体の数平均分子量(Mn)は、500～5万、好ましくは1000～1万である。500より少ないと、セラミック原料粉末の表面に十分に吸着せず分散性が低下する。一方、5万を超えると水溶性バインダーの数平均分子量に近くなり、セラミック原料粉末に対する吸着力が弱くなる。さらに、分散剤は、水溶性バインダーの数平均分子量よりも相対的に小さいことが好ましい。分散剤の数平均分子量が、水溶性バインダーの数平均分子量と同等かあるいはそれよりも大きいと、分散剤がセラミック原料粉末に吸着し、その外側に水溶性バインダーが結合するという好ましい構造が形成できない場合がある。

【0018】また、得られた分散剤の共重合体には、水溶性バインダーと同様に、共重合体中のカルボキシル基の一部または全部を、好ましくは、アンモニアおよび／またはアミンの塩として水溶性を付与する。使用できるアミンおよびその好ましいものについては、上記水溶性バインダーと同様である。この場合も上記水溶性バインダーと同様にpHを6～9に調整することが好ましい。

【0019】そして、本発明のセラミックスラリー組成物は、上記水溶性バインダーおよび分散剤を任意の割合で配合し、必要により水を加えてスラリーとして得る。好ましくは、セラミック原料粉末100重量部に対して水溶性バインダーを固形分として1～25重量部、さらに好ましくは5～15重量部用いるのが良く、また、分散剤を固形分として好ましくは0.1～5重量部、さら

に好ましくは0.2～1.0重量部用いるのが良い。

【0020】さらに、その目的など必要に応じて、たとえば、ポリエチレングリコールやグリセリン等の水溶性可塑剤や、消泡剤、帯電防止剤などの分散剤以外の公知の成形助剤を併用してもよい。

#### 【0021】

【実施例】以下、本発明のセラミックスラリー組成物の実施例を説明する。

#### 実施例

まず、炭酸バリウム( $\text{BaCO}_3$ )および酸化チタン( $\text{TiO}_2$ )を1:1のモル比で秤量し、ボールミルを用いて湿式混合した後、脱水乾燥させた。その後、温度1000℃で2時間仮焼した後、粉碎してセラミック原料粉末を得た。

【0022】次に、以下の方法で表1ないし3に示す試料番号1ないし65の組成をもつ水溶性バインダーおよび分散剤を得た。攪拌機、温度計、還流コンデンサー、滴下ロートおよびガス導入管を備えた1リットルのセパラブルフラスコにエタノール200g、純水200g、重合開始剤アゾビス(4-シアノ吉草酸)2gを仕込み、窒素ガス気流下において70℃に昇温した。次いで、表1ないし3に示す割合でアクリル酸およびアクリル酸メチルを滴下ロートにより2時間かけて滴下し、1時間保温の後、2時間還流して重合を完結させた。得られた共重合体をアンモニア水で中和し、さらに、蒸留によりエタノールを留去して水溶性バインダーを得た。

【0023】溶媒としてテトラヒドロフラン、標準物質としてポリスチレンを用いてGPCにより数平均分子量を測定した。結果を表1ないし3に示す。同様な装置を用い、エタノール400g、重合開始剤アゾビス(4-シアノ吉草酸)8gを仕込み、窒素ガス気流下において70℃に昇温した。次いで、表1ないし3に示す割合でアクリル酸およびアクリル酸メチルを滴下ロートにより2時間かけて滴下し、1時間保温の後、2時間還流して重合を完結させた。得られた共重合体をアンモニア水で中和し、さらに、蒸留によりエタノールを留去して分散剤を得た。GPCによる数平均分子量を表1ないし3に示す。

【0024】次に、先に準備したセラミック原料粉末100重量部と、可塑剤としてジエチレングリコール2重量部と、純水70重量部と、表1ないし3に示す割合における試料番号1ないし65の水溶性バインダーおよび分散剤(固形分)をそれぞれ加え、直径5mmのジルコニア製玉石650重量部とともにボールミルに投入し、20時間湿式混合を行なって試料番号1ないし65にそれぞれ対応するセラミックスラリー組成物を得た。そして、各セラミックスラリー組成物をドクターブレード法により厚さ約30μmのグリーンシートに成形し、次いで乾燥温度80℃で30分間乾燥し、グリーンシートの成形物を得た。

【0025】参考例1

実施例で準備したセラミック原料粉末100重量部と、クラレ製ポリビニルアルコール（PVA-117）を固形分で7重量部と、可塑剤としてジエチレングリコール2重量部と、純水70重量部とを、直径5mmのジルコニア製玉石650重量部とともにボールミルに投入し、20時間湿式混合を行なってセラミックスラリー組成物を得た。そして、このセラミックスラリー組成物をドクターブレード法により厚さ約30μmのグリーンシートに成形し、次いで乾燥温度80℃で30分間乾燥し、グリーンシートの成形物を得た。

【0026】参考例2

実施例で準備したセラミック原料粉末100重量部と、積水化学工業製ポリビニルブチラール（BMS）を固形分で7重量部と、可塑剤としてフタル酸ジブチル2重量部と、トルエン40重量部と、トルエン40重量部と、エタノール40重量部と、直径5mmのジルコニア製玉石650重量部とともにボールミルに投入し、20時間湿式混合を行なってセラミックスラリー組成物を得た。そして、このセラミックスラリー組成物をドクターブレード法により厚さ約30μmのグリーンシートに成形し、次いで乾燥温度80℃で30分間乾燥し、グリーンシートの成形物を得た。

【0027】グリーンシートの評価

上記実施例の試料番号1ないし65および比較例1および2で作製したグリーンシートについて、成形密度、シ

\*ート引張り強度、シート伸び率、および湿中放置によるシート強度変化率を測定した。結果を表1ないし3に示す。なお、測定方法はそれぞれ以下の方法による。

1) 成形密度：成形したグリーンシートを50mm×70mmの大きさを有する角型として打ち抜き、平均厚み測定により体積を求め、測定した重量から除して算出した。分散性が優れる場合は成形密度の値が大きくなる。

2) シート強度および伸び率：上記の打ち抜いたグリーンシートの両端をチャックに固定して（チャック間隔30mm）、引張り試験機を用いて一定速度（10mm/分）で引っ張り、シートが切断される直前の最大値を、シート強度（MPa）および伸び率（%）として求めた。なお、シート伸び率（%）は、シート伸びをチャック間隔で除して算出された数値をもって表わした。グリーンシートの均質性やバインダーの強靱性の指標となり、強度および伸び率がともに大きいものが望ましい。

3) 湿中放置によるシート強度変化率：上記の打ち抜いたグリーンシートを40℃、95%の恒温高湿度槽に24時間放置後、さらに、23℃±2℃、40～60%RHに1時間放置して、シート強度を測定し、初期の強度に対する相対強度（初期100%に対しての強度%）を求めた。雰囲気湿度により強度が変化しないものが望ましい。

【0028】

【表1】

試料番号	原料粉末 (重量部)	水溶性バインダー				分散剤				シート成形 密度 (g/cm <sup>3</sup> )	シート引張 強度 (Mpa)	シート 伸び率 (%)	湿中放置 相対強度 (%)	評価
		添加量 (重量部)	アクリル酸 (g)	アクリル酸 メチル(g)	数平均 分子量	添加量 (重量部)	アクリル酸 (g)	アクリル酸 メチル(g)	数平均 分子量					
※1	100	7	0	100	100000	0.5	70	30	1000	2.9	0.5	10	80	×
※2	100	7	0.3	99.7	100000	0.5	70	30	1000	2.9	1	10	80	×
3	100	7	0.5	99.5	100000	0.5	70	30	1000	3.2	2.5	15	75	△
4	100	7	1	99	100000	0.5	70	30	1000	3.3	3	16	70	△
5	100	7	5	95	100000	0.5	70	30	1000	3.3	4	17	65	○
6	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3.3	5	20	60	○
7	100	7	20	80	100000	0.5	70	30	1000	3.3	5	30	50	△
8	100	7	30	70	100000	0.5	70	30	1000	3.2	4	20	40	△
※9	100	7	40	60	100000	0.5	70	30	1000	3	2.5	10	20	×
10	100	7	10	90	4000	0.5	70	30	1000	3.2	4	10	60	△
11	100	7	10	90	5000	0.5	70	30	1000	3.3	5	16	60	△
12	100	7	10	90	10000	0.5	70	30	1000	3.2	5	19	60	△
13	100	7	10	90	20000	0.5	70	30	1000	3.3	5	20	60	△
14	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3.3	5	20	60	△
15	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3.3	5	20	60	△
※16	100	7	10	90	400000	0.5	70	30	1000	3	2.5	45	60	×

※は本発明の範囲外

【0029】

【表2】

試料 番号	原料 未 (重量部)	水溶性バインダー				分散剤				シート成形 密度 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	シート引張 強度 (Mpa)	シート 伸び率 (%)	湿中放置 相対強度 (%)	評価
		添加量 (重量部)	アクリル酸 (g)	アクリル酸 メチル(g)	数平均 分子量	添加量 (重量部)	アクリル酸 (g)	アクリル酸 メチル(g)	数平均 分子量					
※ 20	100	7	10	90	100000	0.5	50	50	1000	3.1	2.5	10	60	×
21	100	7	10	90	100000	0.5	60	40	1000	3.2	5	18	60	○
22	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3.3	5	20	60	○
23	100	7	10	90	100000	0.5	80	20	1000	3.3	5	18	60	○
24	100	7	10	90	100000	0.5	90	10	1000	3.2	5	15	30	△
25	100	7	10	90	100000	0.5	99.9	0.1	1000	3.1	4	10	30	△
※ 26	100	7	10	90	100000	0.5	100	0	1000	2.9	2.5	10	20	×
※ 27	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	400	3.1	4	10	50	×
28	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	500	3.2	4.5	15	55	△
29	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3.3	5	20	60	○
30	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	5000	3.3	5	22	60	○
31	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	10000	3.3	5	25	60	○
32	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	30000	3.2	4	20	50	△
33	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	50000	3.1	3.5	15	45	△
※ 34	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	60000	2.9	2.5	10	40	×

※は本発明の範囲外

【0030】

【表3】

試料 番号	原料 粉末 (重量部)	水溶性バインダー				分散剤				シート成形 密度 (g/cm <sup>3</sup> )	シート引張 強度 (Mpa)	シート 伸び率 (%)	湿中放置 相対強度 (%)	評価
		添加量 (重量部)	アクリル酸 (g)	メチル(g)	数平均 分子量	添加量 (重量部)	アクリル酸 (g)	メチル(g)	数平均 分子量					
40	100	0	10	90	100000	0.5	70	30	1000	シート状を保てず				×
41	100	1	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3.1	0.5	10	70	△
42	100	5	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3.3	4	18	60	○
43	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3.3	5	20	60	○
44	100	10	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3.3	5	25	50	○
45	100	15	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3.3	7.5	30	40	○
46	100	20	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3.2	7.5	35	35	△
47	100	30	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3	7.5	40	30	△
48	100	7	10	90	100000	0	70	30	1000	3	2	5	50	×
49	100	7	10	90	100000	0.1	70	30	1000	3.2	3	10	50	△
50	100	7	10	90	100000	0.2	70	30	1000	3.3	5	18	60	○
51	100	7	10	90	100000	0.5	70	30	1000	3.3	5	20	60	○
52	100	7	10	90	100000	0.7	70	30	1000	3.3	5	20	60	○
53	100	7	10	90	100000	1	70	30	1000	3.3	5	20	60	○
54	100	7	10	90	100000	5	70	30	1000	3	2	15	50	○
55	100	7	10	90	100000	7	70	30	1000	3	2	10	50	△
56	100	7	10	90	5000	0.5	70	30	1000	3.3	5	18	60	○
57	100	7	10	90	5000	0.5	70	30	30000	2.8	3	10	60	△
58	100	7	10	90	10000	0.5	70	30	1000	3.3	5	19	60	○
59	100	7	10	90	10000	0.5	70	30	30000	2.8	3	12	60	△
60	100	7	10	90	30000	0.5	70	30	1000	3.3	5	20	60	○
61	100	7	10	90	30000	0.5	70	30	30000	2.8	3	10	60	△
62	—	—	—	—	—	—	—	—	—	3.1	5	5	10	—
63	—	—	—	—	—	—	—	—	—	3.3	5	20	70	—

※は本発明の範囲外

※

※

【0031】表1によれば、実施例において本発明の範囲にある試料番号1ないし65（本発明の範囲外である試料番号1、2、9、16、20、26、27、34、40、48を除く）は、従来の水溶性バインダーである参考例1に比べ、分散性が向上しており、また、雰囲気湿度による強度の劣化が少ないことがわかる。また、これらは、有機溶媒系バインダーである参考例2とほぼ同等の性能が得られていることがわかる。

## 【0032】

【発明の効果】本発明のセラミックスラリー組成物は、水系スラリーの分散性安定性に優れ、流動性が良好であり、かつセラミックの成形性に優れ、高密度なグリーンシートを得ることができる。また、得られたグリーンシートは吸湿しにくく、雰囲気湿度による影響を受けて強度が低下することも少なく、有機溶媒系スラリーとほぼ同等の成形密度、強度および伸び率が得られる。